

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-105198
(43)Date of publication of application : 10.04.2002

(51)Int.CI. C08G 73/06
C09K 21/12
C09K 21/14

(21)Application number : 2000-301774 (71)Applicant : MITSUBISHI GAS CHEM CO INC
(22)Date of filing : 02.10.2000 (72)Inventor : HAGIWARA ISAO YAMAZAKI KATSUTOSHI YOKOYAMA JUN HIRAMATSU MASAO

(54) NON-HALOGEN-BASED HIGH ADHESIVE AND FLAME-RETARDANT CYANATE RESIN COMPOSITION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an environmentally harmonious cyanate resin composition which has high heat resistance and high adhesive strength and is a non-halogen-based flame-retardant, and to provide laminates using the same.

SOLUTION: The invention provides a cyanate resin obtained by cyanating a phenolic hydroxy group of a phenolic hydroxy group remaining phosphate obtained by reaction between bisphenols and oxyhalogenated phosphorus and having a phosphate structure in the molecule, and a non-halogen-based laminates using the resin as a flame-retardant component.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision]

of rejection or application
converted registration]
[Date of final disposal for
application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against
examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against
examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-105198

(P2002-105198A)

(43)公開日 平成14年4月10日(2002.4.10)

(51)Int.Cl.⁷C 0 8 G 73/06
C 0 9 K 21/12
21/14

識別記号

F I

C 0 8 G 73/06
C 0 9 K 21/12
21/14

テ-マ-ド*(参考)

4 H 0 2 8
4 J 0 4 3

審査請求 未請求 請求項の数 2 OL (全 6 頁)

(21)出願番号

特願2000-301774(P2000-301774)

(22)出願日

平成12年10月2日(2000.10.2)

(71)出願人 000004466

三菱瓦斯化学株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

(72)発明者 萩原 猪佐夫

東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦
斯化学株式会社東京研究所内

(72)発明者 山崎 克敏

東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦
斯化学株式会社東京研究所内

(72)発明者 横山 潤

東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦
斯化学株式会社東京研究所内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 非ハロゲン系高接着難燃性シアネート樹脂組成物

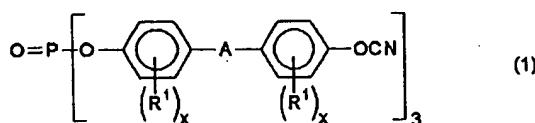
(57)【要約】

【目的】高耐熱および高い接着力を維持して、非ハロゲン系で難燃性を達成する環境調和型のシアネート樹脂組成物およびそれを用いた積層板を提供する。

【構成】ビスフェノール類とオキシハロゲン化リンとの反応で得られるフェノール水酸基残存型リン酸エステルのフェノール水酸基をシアネート化して得られる分子内にリン酸エステル構造を有するシアネート樹脂およびこれを難燃成分として用いた非ハロゲン系積層板。

【特許請求の範囲】

【請求項1】下記一般式(1)



(式中、R¹は、水素原子、低級アルキル基、アリール基もしくはアラルキル基の何れかであり、Aは、メチレン基 [-CH₂-]、-C(CH₃)₂-等のアルキレン基、-O-、-S-、-SO₂-、単結合の何れかであり、xは0~4の整数を示す)で表される化合物が最小構造であるリン酸エステル構造を有するシアネート樹脂を樹脂組成物中のリン含量が0.1から5重量%になるように配合することを特徴とした非ハロゲン難燃性樹脂組成物。

【請求項2】請求項1記載の樹脂組成物を加熱硬化して得られる積層板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ハロゲンを含まない難燃性シアネート樹脂であり、これを用いたプリプレグ、及び積層板に関するものである。

【0002】

【従来の技術】電気・電子機器に広く使用されているプリント配線板には、エポキシ樹脂が一般的に用いられている。そして、火災に対する安全性を確保するために難燃性を考慮した樹脂組成物としてハロゲン含有化合物が一般的に用いられている。近年、高密度、低誘電率そして高信頼性の要求される半導体パッケージ用プリント配線板を中心にエポキシ樹脂よりも高性能な樹脂としてシアネート樹脂が用いられるようになった。現在一般的に用いられているシアネート樹脂としては、ビスフェノールAのジシアネートであり必要特性に応じてビスマレイミドやエポキシ化合物と共に用いられている。そして、同様に火災に対する安全性を確保するために難燃性を考慮した樹脂組成物としてハロゲン含有化合物が一般的に用いられている。

【0003】このハロゲン化合物として代表的なものは、臭素化エポキシ樹脂等の芳香族臭素化物であり、他の物性を低下することなく難燃性を付与できる点で優れている。しかし、これらの化合物は燃焼時に有毒な臭化水素が出るだけではなく、不完全燃焼の際に内分泌かく乱作用物質（環境ホルモン）として知られる猛毒なポリブロモベンゾジオキサン及びポリブロモベンゾフランが発生する恐れがある。この様な指摘を受けて臭素含有難燃剤に代わる環境調和型難燃剤の開発が検討されている。ハロゲン系以外の難燃剤としては、窒素化合物、リン化合物、金属水酸化物などが知られている。金属水酸化物は、大量に添加する必要があるため積層板の誘電率などの物性変化が大きく問題であった。リン化合物は、比較的少量で難燃化が可能であることから種々検討され

【化1】

ている。しかし、一般的なリン系難燃剤であるトリフェニルホスフェートやクレジルジフェニルホスフェートは、これらの化合物の可塑性作用により樹脂のガラス転移点が大幅に低下するばかりではなく、積層板を加工する際のメッキ工程において処理液中に添加したリン系難燃剤が溶出して汚染する問題も生じる。

【0004】一方、シアネート樹脂は、環化3量化してトリアジン環を生成しながら重合することが知られている。このトリアジン環の生成が、シアネート樹脂の耐熱性の要因である。窒素系難燃剤であるメラミン誘導体もトリアジン環を有しているように、シアネート樹脂の硬化物は、エポキシ樹脂と比較すれば、燃焼しにくい樹脂である。しかし、窒素化合物は、効能が小さいので単独使用では難燃化させることが困難であり、他の難燃剤と組み合わせる必要がある。

【0005】ところが、フェノール化合物、有機酸、アミン類、金属塩等は、シアネート樹脂の硬化触媒として知られており、多量に添加するとシアネート樹脂の保存安定性が低下し、時には加熱しなくとも硬化してしまうことも起こる。このようにシアネート樹脂は、非常に反応活性が高いため、組み合わせ可能な難燃剤の範囲は同様な熱硬化性樹脂であるエポキシ樹脂等に比較して大幅に制限されてしまう。また、新規なシアネート樹脂を分子設計する場合もシアネート基の反応活性を考慮した合成を行なう必要があり、エポキシ樹脂で多用される変性等が困難である。以上のような制約からハロゲン化合物を使用せずにシアネート樹脂を難燃化することは難しく、新たな技術の開発が望まれていた。

【0006】

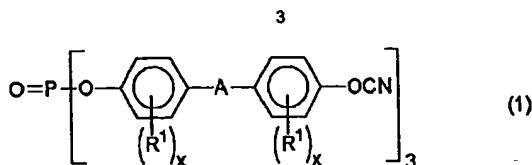
【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、この様な問題を解決すべく検討されたものであり、ハロゲン化合物を用いずに高度に難燃性を付与した環境調和型の高性能シアネート樹脂組成物およびこれを用いた積層板を提供することである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、シアネート化合物の骨格構造と難燃性発現のメカニズムについて鋭意研究を続けた結果、リン酸エステル構造を有するシアネート化合物が上記の目的を満足することを見出し、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は次のとおりである。

下記一般式(1)

【化2】



(式中、R¹は、水素原子、低級アルキル基、アリール基もしくはアラルキル基の何れかであり、Aは、メチレン基 [-CH₂-]、-C(CH₃)₂-等のアルキレン基、-O-、-S-、-SO₂-、単結合の何れかであり、xは0~4の整数を示す)で表される化合物が最小構造であるシアネート樹脂を必須成分とすることを特徴として、他のシアネート化合物もしくはそのプレポリマーと、ハロゲン化されていないエポキシ樹脂および硬化剤を含むシアネート樹脂組成物を基材に含浸してなることを特徴とするプリブレグであり、更にこのプリブレグを1枚以上積層して加熱加圧することで硬化させた難燃性積層板である。

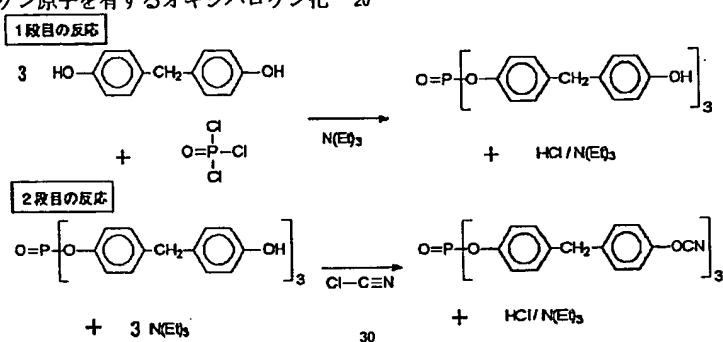
【0008】

【発明の実施の形態】本発明のシアネート樹脂は、1分子中にフェノール水酸基を2個有するビスフェノール類と3個の活性なハロゲン原子を有するオキシハロゲン化

4
リンとを特定の量比範囲で反応させてフェノール水酸基残存型リン酸エステルを合成し、次いで残存しているフェノール水酸基とハロゲン化シアンとを反応させることによりシアネート化することにより得ることができるが、この方法に限定されない。原料であるビスフェノール類を例示すると、ビスフェノールF、ビスフェノールA、ビスフェノールB、ビスフェノールS、ビフェノールなどを挙げることができるがこれらに限定されない。もう1つの原料であるオキシハロゲン化リンとしては、オキシ塩化リン、オキシ臭化リンが挙げられるが、入手が容易なオキシ塩化リンが好ましい。

【0009】反応は、フェノール水酸基残存型リン酸エステルを合成する1段目の反応とシアネート化を行なう2段目の反応があるが、次に示すビスフェノールFを用いた例を用いて反応方法を説明する。なお、反応式1では、便宜上3量体を示してあるが、実際の反応では3量体、5量体、7量体、11量体等の奇数量体の混合物である。

【化3】



【0010】1段目の反応は、トリアリールリン酸エステルの製法として知られる一般的な方法が使用できる。例えば、ビスフェノールFとオキシ塩化リンを有機溶媒に溶解し、塩基を滴下する方法が挙げられるが、これに限定されない。反応で副生する塩化水素の捕捉剤である塩基としては、3級アミンであれば、特に制限はないが、トリエチルアミンやピリジン等を用いることができる。中でもトリエチルアミンが好ましい。用いる有機溶媒としては特に限定されないが、アセトン、メチルエチルケトンのようなケトン類、酢酸エチルのようなエステル類、N,N-ジメチルホルムアミドのような非プロトン系極性溶媒、テトラヒドロフラン等のエーテル類が好適である。また、2種以上の溶媒を混合して用いることもできる。反応温度は、溶媒により適宜選択されるが、一般的に100°C以下が好ましく、0~60°Cが好適である。

【0011】ビスフェノール類に対するオキシハロゲン化リンのモル換算での使用量（オキシハロゲン化リンのモル数をビスフェノール類のモル数で割った値であり、以後、「P/Bis比」と略すことがある）としては、

40 次のような観点から0.1から0.5の範囲が好ましく、0.3から0.45が更に好ましい。P/Bis比値が小さい場合は、生成物中のリン含有率が低く、最終的な組成物において難燃性を維持するリン含量を確保できなくなるため0.1以上が必要である。逆に、P/Bis比値が大きい場合、オキシ塩化リンが3官能であるため反応の進行とともに3次元架橋してゲル化した成分ができるから好ましくない。

【0012】2段目の反応は、ハロゲン化シアンを用いるアリールシアネートの製法として知られる一般的な方法が使用できる。例えば、1段目の反応で調整したフェノール水酸基残存型リン酸エステルと塩基を有機溶媒に溶解し、塩化シアンを含む有機溶媒中に滴下する方法にて実施できるが、これに限定されるものではない。反応で副生する塩化水素の捕捉剤である塩基としては、3級アミンであれば、特に制限はないが、トリエチルアミンやピリジン等を用いることができる。中でもトリエチルアミンが好ましい。用いる有機溶媒としては特に限定されないが、アセトン、メチルエチルケトンのようなケト

ン類、酢酸エチルのようなエステル類、N,N-ジメチルホルムアミドのような非プロトン系極性溶媒、テトラヒドロフラン等のエーテル類が好適である。また、2種以上の溶媒を混合して用いることもできる。更に、1段目の反応を行った反応液をそのまま2段目に供することも可能である。反応温度は、溶媒により適宜選択されるが、一般的に60℃以下が好ましく、0~30℃が好適である。

【0013】本発明の樹脂組成物に用いるリン酸エステル構造を有するシアネット樹脂の使用量は、構造および難燃の等級により適宜選択されるため一概には規定できないが、難燃性の発現は、樹脂組成物中のリン含量に相関する。例えば、ULの難燃規格に適合するためのリン含量としては、0.1重量%が必要であり、1重量%以上が更に好ましい。また、リン酸エステル構造は、樹脂の吸湿率を増加させるため用途によっては好ましくない。そのため、樹脂中のリン含量は、5重量%以下が好ましく、3重量%以下が更に好ましい。

【0014】本発明の樹脂組成物には目的を損なわない範囲で、他の熱硬化性樹脂を併用することができる。具体的に例示すれば、ビスフェノールAおよびビスフェノールFのグリシジルエーテル、フェノールノボラックおよびクレゾールノボラックのグリシジルエーテルなどに代表されるエポキシ樹脂、ビスフェノールAジシアネットもしくはそのプレポリマーで代表されるシアネット樹脂、ビスマレイミド類、シアネット樹脂をビスマレイミドで変性した樹脂、(メタ)アクリル酸エステルまたはジアリルテレフタレートのような重合性不飽和基含有樹脂が挙げられるが、これらに限定されない。また、熱可塑性樹脂も添加することができる。具体的には、ポリフェニレンエーテル、ポリスチレン、ポリブタジエン、ポリイミド、およびこれらの樹脂の各種変性された樹脂を挙げることができるが、これらに限定されない。

【0015】本発明の樹脂組成物の硬化触媒は、シアネット基の硬化触媒として知られる公知のものを用いることができる。具体的には、オクチル酸亜鉛、オクチル酸錫、ジブチル錫ジマレート、アセチルアセトン鉄などの有機金属化合物、塩化アルミニウム、塩化スズ、塩化亜鉛などの金属塩、トリエチルアミン、ジメチルベンジルアミン、2-メチルイミダゾールなどのアミン類、フェノール、カテコールなどのフェノール類が挙げられるが、これらに限定されない。更に、併用する樹脂の種類によっては、必要に応じてその樹脂用の硬化触媒を併用することができる。

【0016】なお、本発明の組成物には目的に応じて無機あるいは有機のフィラーを添加することができる。無機フィラーの具体例としては、水酸化アルミニウム、シリカ、アルミナ、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、マイカ、タルク等およびその表面処理品が挙げられるが、これらに限定されない。

【0017】本発明のシアネット樹脂組成物を用いた銅張積層板の製造は、公知の方法に従うことにより行われる。すなわち、シアネット化合物等を含む熱硬化性樹脂組成物を有機溶剤に溶解させた樹脂ワニスを調整し、これを基材に含浸させ、熱処理してプリプレグとし、このプリプレグと銅箔とを積層して加熱成形して銅張積層板とする方法である。樹脂ワニスに使用される溶媒としては、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、トルエン、キシレン、N,N-ジメチルホルムアミド等の単独もしくは2種類以上の混合溶媒が挙げられる。樹脂ワニスを含浸させる基材としては、ガラス繊維、アルミナ繊維、ポリエステル繊維、ポリアミド繊維等の無機または有機繊維からなる職布、不織布、マット、紙あるいはこれらの組み合わせを挙げができる。プリプレグを得る熱処理条件は、使用した溶媒、触媒量およびその他の添加剤の種類により適宜選択されるが、一般的に知られた条件で行なうことができる。例えば、100℃~200℃の温度で1分~30分加熱する方法が挙げられる。プリプレグと銅箔を積層し銅張積層板とする加熱成形条件としては、150℃~250℃の温度範囲で1MPa~10MPaの成形圧力で30分~300分の加熱プレスする方法が挙げられる。

【0018】

【実施例】以下に本発明の実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例、比較例における部および%は特に断らない限り重量基準である。

合成例1 [フェノール水酸基残存型リン酸エステルの合成]

メチルエチルケトン2リットルにビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン[本州化学工業(株)製 ビスフェノールF]400gを溶解し、温度計、攪拌装置、冷却管、滴下管を付けた5リットル反応器に仕込んだ。この溶液を5℃まで冷却した後、オキシ塩化リン123gとメチルエチルケトン500ミリリットルを加えた。次に反応温度を5℃に維持しながらトリエチルアミン267gを滴下することにより反応を行なった。滴下終了後、25℃にて2時間熟成反応を行い反応を完結させた。反応液を0.1N塩酸500ミリリットルで2回および水500ミリリットルで1回の洗浄を行なうことにより過剰のトリエチルアミンおよび反応で生成したトリエチルアミン塩酸塩を除去した。洗浄後の反応液から減圧下でメチルエチルケトンを留去して目的とするフェノール水酸基残存型のリン酸エステル432gを得た(収率=99.3%)。なお、この合成例1の化合物はビスフェノールFとオキシ塩化リンを5:2のモル比で反応させたことからBF5P2と呼ぶ。BF5P2は、ゲルバーミネーションクロマトグラフィー(GPC)により高分子化の反応が起きていることを確認し、赤外吸収スペクトル(IR)分析によりリン酸エステルの吸収(P=O : 1200cm⁻¹, P-O-C : 980

cm⁻¹) があることで同定した。

【0019】合成例2

合成例1と同様な操作にて、ビスフェノールF 400 g、オキシ塩化リン 102 g、トリエチルアミン 222 gを用いて反応を行い、目的物を得た。この化合物は、ビスフェノールFとオキシ塩化リンを3:1のモル比で反応させたことからBF3P1と呼ぶ。このBF3P1の収量は、426 gであり、収率=99.3%であった。

【0020】合成例3

合成例1と同様な操作にて、ビスフェノールFの代わりに2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン[和光純薬工業(株)製 通称:ビスフェノールA]400 gとオキシ塩化リン 107 g、トリエチルアミン 234 gを用いて反応を行い、目的物を得た。この化合物は、ビスフェノールAとオキシ塩化リンを5:2のモル比で反応させたことからBA5P2と呼ぶ。このBA5P2の収量は、428 gであり、収率=99.4%であった。

【0021】合成例4 【シアネート化反応】

温度計、攪拌装置、冷却管、滴下管を付けた5リットル反応器にクロロシアン127 gを含むジクロロメタン溶液1リットルを仕込み0℃に冷却した。次に、合成例1で得られたBF5P2 432 gおよびトリエチルアミン 193 gをアセトン1リットルに溶解した溶液を反応温度が0℃になるように滴下した。滴下終了後、25℃で2時間熟成反応を行い反応を完結させた。反応液を0.1 N塩酸500ミリリットルで2回および水500ミリリットルで1回の洗浄を行なうことにより過剰のトリエチルアミンおよび反応で生成したトリエチルアミン塩酸塩そしてアセトンを除去した。洗浄後の反応液から減圧下でジクロロメタンを留去し、最後に真空中で140℃まで加熱して低沸不純物を留去した。フラスコに残った不揮発成分が目的性生物であり、原料がBF5P2であることからBF5P2-CNと呼ぶ。このBF5P2-CNの収量は、466 gであり、収率=98.8%であった。なお、このBF5P2-CNをアルミバットに投入し、冷蔵庫にて冷却して固形化した。生成物は、ゲルバーミネーションクロマトグラフィー(GPC)によりBF5P2の分子量が維持されていることを確認し、赤外吸収スペクトル(IR)分析により水酸基の3300cm⁻¹の吸収が無くなり、シアネート基の2200cm⁻¹の吸収が出現したことで同定した。

【0022】合成例5

合成例4と同様な操作にて合成例2で得られたBF3P1 426 g、クロロシアン 159 g、トリエチルアミン 241 gを用いてBF3P1-CN 471 g(収率=99.0%)を得た。

【0023】合成例6

合成例4と同様な操作にて合成例3で得られたBA5P2 428 g、クロロシアン 111 g、トリエチルアミン 169 gを用いてBA5P2-CN 457 g(収率=99.7%)を得た。

【0024】合成例7

ビスフェノールA・ジシアネット[2,2-ビス(4-シアナトフェニル)プロパン、商品名:スカイレックスCA200(三菱ガス化学(株)製)]1000部を反応温度155℃にて7時間反応させることによりビスフェノールA・ジシアネットのプレポリマーを得た。得られたプレポリマーは、GPCによる測定の結果、数平均分子量(Mn)=1360であった(以後、このプレポリマーをBPA-CN-Pと呼ぶ)。

【0025】実施例1

フェノールノボラック・エポキシ(大日本インキ化学(株)製、商品名:エピクリロンN-770)100部、合成例7の2,2-ビス(4-シアナトフェニル)プロパンのプレポリマー(BPA-CN-P)54部、合成例4で合成したBF5P2-CN 96部をメチルエチルケトン 250部に溶解し、不揮発分50%の溶液とし硬化触媒2-エチルヘキサン酸亜鉛(Zn-EHx)0.01部を添加して樹脂ワニスを調整した。

【0026】この樹脂ワニスを厚さ0.1mmのガラスクロス(有沢製作所製 1031)に含浸させ160℃で5分間の加熱熟成を行なうことにより、樹脂量50%のプリプレグを得た。このプリプレグを4枚積層し、両面に厚さ18μmの銅箔(三井金属工業(株)製 3EC-II I)を重ね、面圧2MPa、昇温1.5℃/minで200℃-120minの条件で真空加熱プレスを行い、銅張積層板を得た。この積層板の特性を表-1に示した。

【0027】実施例2および3と比較例1~4

表-1に記載した樹脂組成にて実施例1と同様のプリプレグを作成し、同様に銅張積層板をえた。この積層板の特性を表-1に示した。比較例1では、硬化反応しないレゾルシノールビスジフェニルホスフェート(RDP)の比率が高く、ガラス転移点が低下し、耐熱性が劣る。比較例2では、水酸化アルミニウムを併用することでRDPの使用量を削減したが、水酸化アルミニウムの分解の影響もあり、耐熱性が低い。比較例3では、難燃成分を添加しないため耐熱および電気特性は良好であるが、難燃性試験において消炎せずに最上端まで燃焼してしまった。比較例4は、臭素化されたエポキシを難燃成分として使用した例である。

【0028】表-1

	実施例			比較例			
	1	2	3	1	2	3	4
N-770 (a)	100	100	100	100	100	100	100
BPA-CN-P (b)	54	34	43	81	122	100	114
BF5P2-CN (c)	96						
BF3P1-CN (d)		116					
BA5P2-CN (e)			107				
RPD (f)				69	28		
ハイジライト (g)					70		
EPICRON-153 (h)						70	
Zn-EHex (i)	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
P%	2.0%	2.0%	2.0%	2.5%	1.0%		Br: 12%
難燃性	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	HB	V-0
ガラス転移点	221°C	218°C	223°C	176°C	204°C	220°C	217°C
銅箔引き剥がし強度	1.5	1.5	1.5	1.0	1.1	1.3	1.3

(a)大日本インキ化学(株)製 フェノールノボラック
・エポキシ
(b)合成例7の2,2-ビス(4-シアナトフェニル)プロパンのプレポリマー
(c)合成例4のシアネート樹脂
(d)合成例5のシアネート樹脂
(e)合成例6のシアネート樹脂
(f)味の素ファインテクノ(株)製 レゾルシノールビスジフェニルホスフェート
(g)昭和電工(株)製 水酸化アルミニウム
(h)大日本インキ化学(株)製 臭素化エポキシ樹脂
(i)硬化触媒: 和光純薬工業(株)製 2-エチルヘキサノ酸亜鉛
表-1において、物性は次に記載する方法もしくは測定器を用いて行なった。
(1)難燃性: UL94垂直法に準拠して燃焼時間により評価した。各種銅張積層板の銅箔をエッチング除去した板から幅12.7mm、長さ127mmを切り出したものを試験片とした。試験は、各5個の試験片に対して対して

2回の接炎を行い、消炎時間を測定した。なお、平均消炎時間が5秒以内で且つ最長消炎時間が10秒以内である物がUL94V-0である。消炎しない物がHBとなる。
(2)ガラス転移温度(Tg): セイコーインスツルメンツ(株)製の熱分析システム製SSC5200を用いて、昇温速度5°C/min、周波数10Hzで動的粘弾性測定(DMA)を行い、損失正接(tan δ)ピークより求めた。

30 (3)銅箔引き剥がし強度: JIS規格(C6481)に準拠して行なった。銅箔は、三井金属工業(株)の3EC-III(18μm)を使用した。単位は、kN/mである。

【0029】

【発明の効果】本発明は、ハロゲン化合物を使用せずに難燃性を実現する環境調和型のシアネート樹脂積層板であり、更に優れた耐熱性および高い銅箔との接着力を兼ね備えたものである。したがって、高い接着力が要求される高密度表面実装用の基板材料として有用である。

フロントページの続き

(72)発明者 平松 聖生
東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社東京研究所内

Fターム(参考) 4H028 AA35 AA46
4J043 PA02 QC23 RA47 SA13 SA81
SA87 SB01 UA131 UB121
UB281 UB301 UB381 VA021
VA041 XA38 XB15 XB17
XB19 XB22 ZB50